

**PATENT APPLICATION**

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the Application of

Yasunori ANDO et al.

Application No.: 10/647,253

Filed: August 26, 2003

Docket No.: 116942

For: COMPOSITIONS AND METHODS FOR MAKING MICROPOROUS CERAMIC MATERIALS

**CLAIM FOR PRIORITY**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior foreign applications filed in the following foreign country(ies) is hereby requested for the above-identified patent application and the priority provided in 35 U.S.C. §119 is hereby claimed:

Japanese Patent Application No. 2002-248458 filed on August 28, 2002

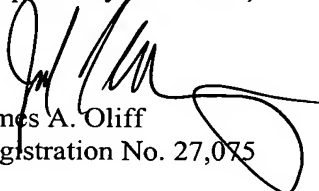
Japanese Patent Application No. 2002-286830 filed on September 30, 2002

In support of this claim, certified copies of said original foreign applications:

☒ are filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 U.S.C. §119 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of these documents.

Respectfully submitted,

  
James A. Oliff  
Registration No. 27,075

Joel S. Armstrong  
Registration No. 36,430

JAO:JSA/amo

Date: November 28, 2003

**OLIFF & BERRIDGE, PLC**  
**P.O. Box 19928**  
**Alexandria, Virginia 22320**  
**Telephone: (703) 836-6400**

**DEPOSIT ACCOUNT USE  
AUTHORIZATION**

Please grant any extension  
necessary for entry;  
Charge any fee due to our  
Deposit Account No. 15-0461

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 8月28日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-248458

[ST.10/C]:

[JP2002-248458]

出 願 人

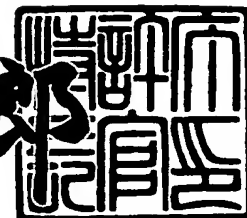
Applicant(s):

株式会社ノリタケカンパニーリミテド  
中部電力株式会社

2003年 6月17日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田 信一郎



出証番号 出証特2003-3047350

【書類名】 特許願

【整理番号】 K01-434

【提出日】 平成14年 8月28日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C04B 38/00  
B01D 39/20

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市西区則武新町三丁目1番36号 株式会社  
ノリタケカンパニーリミテド内

【氏名】 安藤 泰典

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市西区則武新町三丁目1番36号 株式会社  
ノリタケカンパニーリミテド内

【氏名】 山田 誠司

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市西区則武新町三丁目1番36号 株式会社  
ノリタケカンパニーリミテド内

【氏名】 田口 久富

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市緑区大高町字北関山20番地の1 中部  
電力株式会社 電力技術研究所内

【氏名】 長屋 重夫

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市緑区大高町字北関山20番地の1 中部  
電力株式会社 電力技術研究所内

【氏名】 古村 清司

【特許出願人】

【識別番号】 000004293

【氏名又は名称】 株式会社ノリタケカンパニーリミテド

【特許出願人】

【識別番号】 000213297

【氏名又は名称】 中部電力株式会社

【代理人】

【識別番号】 110000110

【氏名又は名称】 特許業務法人 快友国際特許事務所

【代表社員】 小玉 秀男

【電話番号】 052-588-3361

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 172662

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ケイ素を主体とする非酸化物系多孔質セラミック材の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 金属シリコン粉末と窒化ケイ素粉末及び／又は炭化ケイ素粉末とを含む成形用材料であって、窒化ケイ素粉末と炭化ケイ素粉末の合計 1 0 0 質量部に対して 5 ～ 6 0 質量部の金属シリコン粉末を含む成形用材料を用意する工程と、

該成形用材料を所定の形状に成形する工程と、

該成形用材料から成る成形体を窒化可能な雰囲気中で反応焼結させる工程と、を包含する、ケイ素を主体とする非酸化物系多孔質セラミック材の製造方法。

【請求項 2】 前記成形用材料は、窒化ケイ素粉末と炭化ケイ素粉末の合計 1 0 0 質量部に対して 2 5 ～ 4 5 質量部の金属シリコン粉末を含む、請求項 1 に記載の製造方法。

【請求項 3】 前記金属シリコン粉末の平均粒径と前記窒化ケイ素粉末及び／又は炭化ケイ素粉末の平均粒径はいずれも  $1\ \mu\text{m}$  ～  $50\ \mu\text{m}$  である、請求項 1 又は 2 に記載の製造方法。

【請求項 4】 前記成形工程において、前記成形用材料を成形圧  $30\text{MPa}$  ～  $200\text{MPa}$  で加圧成形する、請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】 本発明は、ケイ素を主体とする非酸化物系多孔質セラミック材及びその製造方法に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】 気体又は液体の濾過材、触媒担体、或いは、ガス分離材等として使用するセラミック分離膜の基材として、種々の多孔質セラミック材が使用されている。

近年、これらの用途に用いられる多孔質セラミック材として、窒化ケイ素、炭化ケイ素のような、ケイ素を主体とする非酸化物系セラミック材が注目されている。特に窒化ケイ素を主要構成要素とする多孔質セラミック材は、耐熱性や耐熱

衝撃性に優れており、高温条件下（300℃以上、例えば600～1000℃）で使用するのに適している。

例えば、特開平8-133857号公報には、気体濾過用フィルターや触媒担体として高温条件下で使用する窒化ケイ素主体の多孔質セラミック材およびその製造方法が記載されている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 上記列挙した用途等に用いられるケイ素を主体とする非酸化物から成る多孔質セラミック材は、従来、当該非酸化物の粉末（例えば窒化ケイ素粉末）を原料として用い、その粉末を所定の形状に成形し、そして焼結する方法によって作製されている（上記公報参照）。

しかし、窒化ケイ素等の非酸化物セラミック粉末は、他の一般的な酸化物セラミック粉末（シリカ粉、アルミナ粉等）に比べて高価な素材である。このため、かかる方法によって得られる窒化ケイ素等の非酸化物系セラミック材は、比較的成本高であった。

そこで本発明は、従来よりも原料コストを抑え、より廉価にケイ素を主体とする非酸化物系多孔質セラミック材、特に濾過材、触媒担体、セラミック分離膜（ガス分離膜等）の基材として適する多孔質セラミック材およびその製造方法を提供することを目的とする。

【0004】

【課題を解決するための手段、作用及び効果】 上記目的を達成すべく、本発明によってケイ素を主体とする非酸化物系多孔質セラミック材（以下単に「非酸化物系多孔質セラミック材」という。）の製造方法が提供される。

すなわち、本発明によって提供される製造方法の一つは、金属シリコン粉末と窒化ケイ素粉末及び／又は炭化ケイ素粉末とを含む成形用材料であって、窒化ケイ素粉末と炭化ケイ素粉末の合計100質量部に対して5～60質量部の金属シリコン粉末を含む成形用材料を用意する工程と、該成形用材料を所定の形状に成形する工程と、その成形用材料から成る成形体を窒化可能な雰囲気中で反応焼結させる工程（金属シリコンから窒化ケイ素を生じさせる工程）とを包含する。

【0005】

この製造方法では、窒化ケイ素粉末や炭化ケイ素粉末よりも廉価である金属シリコン粉末を含有する成形用材料を用意（典型的には調製）する。これにより、原料コストの低減が実現され、より廉価に非酸化物系多孔質セラミック材を製造することができる。また、金属シリコン粉末を上記の配合比で含有する成形用材料は、窒化ケイ素又は炭化ケイ素粉末のみから成る成形用材料よりも成形性が良好である（成形し易い）。このため、押出成形技法等を採用することによって、所望する形状の多孔質セラミック材を容易に製造することができる。

また、上記の配合比で窒化ケイ素粉末及び／又は炭化ケイ素粉末（典型的にはいずれか一方の粉末）と、金属シリコンとを含む成形用材料を使用することによって、細孔径分布が比較的狭く、上記用途に適する非酸化物系多孔質セラミック材を製造することができる。

なお、特公昭 5 2 - 1 9 2 0 7 号公報や特開平 7 - 8 1 9 0 9 号公報には、金属シリコンを反応焼結させて窒化ケイ素を製造する方法が記載されているが、これら公報に記載の方法は、緻密構造の窒化ケイ素構造体やインゴットを製造するための方法であり、本発明の製造方法で製造されるような多孔質セラミック材を製造するのに適する方法ではない。すなわち、従来の金属シリコン窒化方法によって得られたセラミック材では、細孔径がサブミクロンオーダー以下となってしまう、フィルター等に適さない。

#### 【 0 0 0 6 】

好ましい一つの製造方法では、上記成形用材料として、窒化ケイ素粉末と炭化ケイ素粉末の合計 1 0 0 質量部に対して 2 5 ~ 4 5 質量部の金属シリコン粉末を含むものを用いる。このことによって、濾過材あるいはガス分離膜の支持体（基材）として好適な多孔質セラミック材（典型的には孔径 1  $\mu$  m 前後の細孔に富むセラミック材）を比較的廉価に製造することができる。

#### 【 0 0 0 7 】

また、好ましい他の一つの製造方法では、前記金属シリコン粉末の平均粒径と前記窒化ケイ素粉末及び／又は炭化ケイ素粉末の平均粒径がいずれも 1  $\mu$  m ~ 5 0  $\mu$  m であることを特徴とする材料を用いる。かかる平均粒径の粉末を混在させた成形用材料を用いると、孔径 1  $\mu$  m 前後の細孔に富み、上記用途に適する多孔

質セラミック材を容易に製造することができる。

【0008】

また、好ましい他の一つの製造方法では、前記成形工程において、前記成形用材料を成形圧 30MPa～200MPa で加圧成形する。

かかる加圧成形を行うことにより、細孔径分布が比較的狭い、上記用途に適する多孔質セラミック材を製造することができる。

【0009】

【発明の実施の形態】 以下、本発明の好適な実施形態を説明する。なお、本明細書において特に言及している事項（例えば成形用材料を調製するための原料粉末の配合比）以外の事柄であって本発明の実施に必要な事柄（例えば原料粉末の混合方法や押出成形の手順）は、当該分野における従来技術に基づく当業者の設計事項として把握され得る。本発明は、本明細書に開示されている内容と当該分野における技術常識とに基づいて実施することができる。

【0010】

本発明の実施に用いられる成形用材料は、窒化ケイ素及び／又は炭化ケイ素（典型的には窒素ケイ素又は炭化ケイ素の一方のみ）と金属シリコンとを主成分とする粉末ベースの材料である。

使用する窒化ケイ素粉末及び炭化ケイ素粉末（典型的にはどちらか一方を使用する）としては、平均粒径（顕微鏡測定又は沈降法に基づく）が 0.1～100  $\mu\text{m}$  のものが適当であり、1～50  $\mu\text{m}$  のものが好適であり、1～20  $\mu\text{m}$  のものがさらに好ましく、2～10  $\mu\text{m}$  のものが特に好ましい。

窒化ケイ素粉末及び炭化ケイ素粉末としては、 $\alpha$  型、 $\beta$  型、アモルファス型のいずれを使用してもよいが、特に熱的に安定な  $\beta$  型の窒化ケイ素粉末や炭化ケイ素粉末の使用が好ましい。 $\beta$  型の粉末のみ或いは  $\beta$  型の存在割合の高い（例えば 50 mass% 以上が  $\beta$  型）窒化ケイ素粉末及び／又は炭化ケイ素粉末を使用することによって、気体又は液体の濾過材、触媒担体、セラミック分離膜を表面に形成するための多孔質基材として好適なサイズの細孔に富むセラミック材を容易に製造することができる。

【0011】



金属シリコン粉末としては、従来から、反応焼結によって窒化ケイ素を製造するのに用いられているものであれば特に制限なく用いることができる。例えば、比表面積  $0.1 \sim 5 \text{ m}^2/\text{g}$  であるものが好ましい。また、平均粒径（顕微鏡測定又は沈降法に基づく）が  $1 \sim 50 \mu\text{m}$  のものが好適であり、 $1 \sim 20 \mu\text{m}$  のものがさらに好ましく、 $2 \sim 10 \mu\text{m}$  のものが特に好ましい。

金属シリコン粉末の純度は高いほうが望ましく、例えば 95% 以上の純度のものが好適である。99% 以上の高純度シリコンの使用が特に好ましい。なお、使用するシリコンの粉末形状は特に限定されず、球形又はそれに近い形状のみならず、例えばロールミルがけやスタンプミルがけによって調製された不規則形状の粒子の集合体である粉末も好適に使用することができる。

#### 【0012】

特に限定するものではないが、窒化ケイ素粉末及び／又は炭化ケイ素粉末と金属シリコン粉末とを混合する場合、不純物と金属シリコンの酸化に留意するとよい。例えば、窒素、アルゴン等の非酸化性雰囲気中でこれら原料粉末の混合（更に必要に応じて粉砕）を行うとよい。

窒化ケイ素粉末と炭化ケイ素粉末の合計 100 質量部に対して  $5 \sim 60$  質量部（より好ましくは  $10 \sim 60$  質量部、さらに好ましくは  $10 \sim 50$  質量部）の金属シリコン粉末を混合するとよい。平均細孔径（水銀圧入法に基づく）が  $0.5 \sim 2 \mu\text{m}$  程度（典型的には  $0.8 \sim 1.5 \mu\text{m}$ ）の多孔質セラミック材を製造する場合には、窒化ケイ素粉末と炭化ケイ素粉末の合計 100 質量部に対して  $25 \sim 45$  質量部（より好ましくは  $35 \sim 45$  質量部、特に好ましくは略 40 質量部）の金属シリコン粉末を混合するとよい。これら原料粉末の混合は、ボールミル、ミキサー等の一般的な混合手段を用いて行うことができる。

成形用材料には、上記原料粉末の他に種々の添加剤を適宜混在させることができる。例えば、粒成長を抑制したり、多孔質構造を安定化させたりする目的のために種々の焼結助剤を添加することができる。また、採用する成形法に応じて適当なバインダーを添加することができる。例えば、押出し成形に供試する成形用材料は、上記原料粉末の混合物に適当なバインダーと分散媒（水、エタノール等）を配合・混練することによって調製することができる。かかるバインダーとし

ては、ポリビニルアルコール、メチルセルロース類、ポリエチレングリコール類、プロピレングリコール、グリセリン等が使用できる。バインダーの配合比としては、上機原料粉末の混合物（即ち、窒化ケイ素及び／又は炭化ケイ素と金属シリコンとの混合物）100質量部に対して5～30質量部程度が適当であるが特に限定するものではない。

なお、混練手段としては、ニーダーや種々のミキサー類（リボンミキサー、ヘンシェルミキサー等）が使用できる。

#### 【0013】

成形用材料を成形する方法は、特に限定されず、一般的なセラミック材の成形方法を適用することができる。例えば、押出し成形、プレス成形、型込め成形が挙げられる。フローティングダイやプレス機を利用した加圧成形（一軸加圧成形、静水圧プレス等）が好適である。ホットプレス及びコールドプレスのいずれでもよい。

成形用材料の充填率にもよるので特に限定するものではないが、好ましくは、30MPa～200MPa程度で加圧成形するとよい。平均細孔径（水銀圧入法に基づく）が0.5～2 $\mu$ m程度（典型的には1～1.5 $\mu$ m）の多孔質セラミック材を製造する場合には、概ね50MPa～150MPa（より好ましくは50～200MPa）程度の加圧が好ましい。

#### 【0014】

本発明の製造方法では、窒化可能な雰囲気（好ましくは窒素分圧が50kPa以上となる窒素ガス、アンモニアガス等を主体とする雰囲気であって酸素を実質的に含まない雰囲気）中で、典型的には窒化可能な温度域（好ましくは1200～1500℃）で2～12時間程度、上記成形用材料から成る成形体を焼成する。これよりも焼成温度が高すぎたり焼成時間が長すぎたりすると、焼結体中に針状の $\beta$ 型窒化ケイ素が多量に生成・析出し、所望するサイズよりも細孔径が小さくなったり細孔径分布がブロードになりがちであるため好ましくない。

例えば、窒素雰囲気中で、室温から中間温度域（700～900℃程度）まで2～10℃/分程度（好ましくは5～7℃/分）の昇温速度で加熱する。その後、窒化可能な温度域（典型的には1200℃以上）まで1～5℃/分程度の昇温

速度で加熱する。その後、窒化可能な温度域で2～10時間程度保持することが好ましい。なお、かかる保持の間、温度を一定にする必要はなく適当に変動させてもよい。例えば1300℃で2時間保持し、その後1500℃まで1時間で昇温し、その温度でさらに1時間保持するような形態であってもよい。

上記の条件で反応焼結を行うことによって、金属シリコン粒子から $\alpha$ 型窒化ケイ素を効率よく生成することができる。

#### 【0015】

本発明の製造方法によると、反応焼結で主として $\alpha$ 型窒化ケイ素が生成され、細孔径分布のピーク値又は平均孔径が略0.5～2 $\mu$ m（より好ましくは0.6～1.6 $\mu$ m、さらに好ましくは0.8～1.5 $\mu$ m、特に好ましくは0.8～1.2 $\mu$ m）の範囲内にあるような、上記用途に適する非酸化物系多孔質セラミック材が得られる。

本発明によると、炭化ケイ素粉末や窒化ケイ素粉末よりも廉価な金属シリコン粉末を利用することによって、濾過材、触媒担体、セラミック分離膜の基材等として用いられる多孔質セラミック材を比較的低コストで提供することができる。

従って、本発明の一側面として、金属シリコン粉末と窒化ケイ素粉末及び／又は炭化ケイ素粉末とを含む成形用材料であって窒化ケイ素粉末と炭化ケイ素粉末の合計100質量部に対して5～60質量部（好ましくは10～60質量部、さらに好ましくは10～50質量部、特に好ましくは25～45質量部）の金属シリコン粉末を含む成形用材料を用意する工程と、該成形用材料を所定の形状に成形する（好ましくは30MPa～200MPaで加圧成形する）工程と、該成形用材料から成る成形体を窒化可能な雰囲気中で（好ましくは上記した昇温条件に基づいて）反応焼結させる工程とを包含する、セラミック分離膜形成用の多孔質セラミック基材を製造する方法が提供される。

#### 【0016】

【実施例】 以下に説明する実施例によって、本発明を更に詳細に説明するが、本発明をかかる実施例に示すものに限定することを意図したものではない。

#### 【0017】

<多孔質セラミック材の調製>

高純度シリコン粉末（純度：96%以上、平均粒径：約12 $\mu$ m）と、平均粒径が約40 $\mu$ mの炭化ケイ素粉末（純度95%以上、フリーカーボン1%以下、以下「40 $\mu$ m SiC粉末」と略称する）、平均粒径が約5 $\mu$ mの炭化ケイ素粉末（純度95%以上、フリーカーボン1%以下、以下「5 $\mu$ m SiC粉末」と略称する）または平均粒径が約4 $\mu$ mの窒化ケイ素粉末（純度95%以上、以下「Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>粉末」と略称する）とを用いて、表1及び表2に示す配合比の成形用材料（SiC粉末について実施例1～6及び比較例1～6、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>粉末について実施例7、8及び比較例7）を調製した。

【0018】

【表1】

	配合比（g）		
	炭化ケイ素 （粒径約40 $\mu$ m）	炭化ケイ素 （粒径約5 $\mu$ m）	金属シリコン （粒径約12 $\mu$ m）
実施例1	50	—	5
実施例2	50	—	10
実施例3	50	—	20
実施例4	—	50	5
実施例5	—	50	10
実施例6	—	50	20
比較例1	50	—	45
比較例2	50	—	110
比較例3	—	50	30
比較例4	—	50	45
比較例5	—	50	110
比較例6	—	—	100

粒径は平均粒径、成形圧は約100MPa

【0019】

【表 2】

	配合比 (g)	
	窒化ケイ素 (粒径約 $4\mu\text{m}$ )	金属シリコン (粒径約 $12\mu\text{m}$ )
実施例 7	50	4.8
実施例 8	50	9.4
比較例 7	50	41.2

粒径は平均粒径、成形圧は約  $100\text{MPa}$

## 【0020】

すなわち、表 1 及び表 2 に示す配合比となるように、 $40\mu\text{mSiC}$  粉末、 $5\mu\text{mSiC}$  粉末又は  $\text{Si}_3\text{N}_4$  粉末に上記シリコン粉末を添加し、さらに適量の水を加えてボールミルで 30 分間混合した。なお、表 1 中の比較例 6 は、 $\text{SiC}$  粉末も  $\text{Si}_3\text{N}_4$  粉末も添加することなくシリコン粉末と水をボールミルに入れて同様の処理を行った。

## 【0021】

乾燥後、得られた成形用材料を直径  $29\text{mm}$  のプレス金型に充填した（試料重量：約  $3\text{g}$ ）。

そして、約  $100\text{MPa}$  ( $1000\text{kg}/\text{cm}^2$ ) の成形圧で一軸加圧成形した。成形後、窒素雰囲気にした電気炉中で室温から  $800^\circ\text{C}$  まで 2 時間かけて昇温し（昇温速度  $5\sim7^\circ\text{C}/\text{分}$ ）、次いで  $1200^\circ\text{C}$  まで 2 時間かけて昇温した（昇温速度  $2\sim4^\circ\text{C}/\text{分}$ ）。その後、 $1375^\circ\text{C}$  まで 1 時間かけて昇温し（昇温速度  $2\sim4^\circ\text{C}/\text{分}$ ）、 $1375^\circ\text{C}$  で 2 時間保持した後、 $1500^\circ\text{C}$  まで 1 時間かけて昇温した（昇温速度  $1\sim3^\circ\text{C}/\text{分}$ ）。そして  $1500^\circ\text{C}$  で 1 時間保持した後、室温まで徐々に冷却した。

以上の一連の処理を行って、各成形用材料から上記金型に対応する直径  $29\text{mm}$ 、高さ  $2\text{mm}$  の円板形状の多孔質セラミック材（実施例 1～6，比較例 1～6）を得た。

## 【0022】

＜多孔質セラミック材の性状評価＞

得られた各セラミック材の細孔径および気孔率を調べた。すなわち、市販の水銀ポロシメーター（マイクロメリテック社製品、商品名：AutoporeIII）を使用し、水銀圧入法に基づいて細孔径分布およびそのピーク値ならびに気孔率を求めた。

また、実施例 1 ～ 6 及び比較例 1 ～ 6 については炭化ケイ素(SiC)と窒化ケイ素( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )の体積比ならびに実施例 7, 8 及び比較例 7 については窒化ケイ素（原料成分即ち  $\text{Si}_3\text{N}_4$  粉末由来）と窒化反応によって生じた窒化ケイ素（窒化成分即ち金属シリコン由来）の体積比を各原料の調合（使用量）から計算した。

結果を表 3 及び表 4 に示す。

【0023】

【表 3】

	体積比 (%)		細孔径ピーク ( $\mu\text{m}$ )	気孔率 (%)
	炭化ケイ素	窒化ケイ素		
実施例 1	90	10	5.86	44
実施例 2	82	18	3.08	36
実施例 3	70	30	1.07	37
実施例 4	90	10	1.76	52
実施例 5	82	18	1.29	48
実施例 6	70	30	1.17	45
比較例 1	51	49	0.17	32
比較例 2	30	70	0.12	31
比較例 3	61	39	0.24	40
比較例 4	51	49	0.13	37
比較例 5	30	70	0.16	34
比較例 6	0	100	0.14	38

【0024】

【表 4】

	体積比 (%)		細孔径ピーク ( $\mu\text{m}$ )	気孔率 (%)
	窒化ケイ素 (原料成分)	窒化ケイ素 (窒化成分)		
実施例 7	90	10	0.7	38
実施例 8	82	18	0.5	37
比較例 7	51	49	0.15	36

## 【0025】

表 3 に示すように、実施例 1 ～ 6 の多孔質セラミック材は、いずれも細孔径のピーク値が  $1\ \mu\text{m}$  以上にあり、そのピーク値を中心に狭い細孔径分布を示した。また、気孔率も 35 ～ 50 % 程度あった。従って、これらセラミック材は、ガスや水の濾過材として或いはガスや空気が透過可能な触媒担体として好適に用いられる。特に、実施例 3 および実施例 6 に係るセラミック材は、細孔径分布のピーク値が  $0.8 \sim 1.2\ \mu\text{m}$  の範囲内にあり、ガス分離等に用いられるセラミック分離膜の基材として特に好適に用いることができる。

他方、比較例 1 ～ 6 のセラミック材は、形成される細孔径が小さすぎ、上記用途に適さないセラミック材である。

## 【0026】

また、表 4 に示すように、実施例 7 及び 8 の多孔質セラミック材は、細孔径のピーク値が  $0.5\ \mu\text{m}$  以上あり、そのピーク値を中心に狭い細孔径分布を示した。また、気孔率も 35 ～ 40 % 程度であった。従って、これらセラミック材についても実施例 1 ～ 6 のセラミック材と同様、ガスや水の濾過材として或いはガスや空気が透過可能な触媒担体として好適に用いることができる。特に実施例 7 に係るセラミック材は、細孔径分布のピーク値が約  $0.7\ \mu\text{m}$  であり、高温条件下でのガス分離等に用いられるセラミック分離膜の基材として好適に用いることができる。

他方、比較例 7 のセラミック材は、形成される細孔径が小さすぎ、上記用途に適さないセラミック材である。

## 【 0 0 2 7 】

実施例 6 に係るセラミック材の表面（図 1）および比較例 1 に係るセラミック材の表面（図 2）を電子顕微鏡（SEM）で観察した。その結果、比較例 1 に係るセラミック材の表面には、針状の  $\beta$  型窒化ケイ素が多量に存在し、比較的緻密な構造であることが認められた。一方、実施例 6 に係るセラミック材の表面には、針状の  $\beta$  型窒化ケイ素は殆ど存在しておらず、細孔に富む構造であることが認められた。

## 【 0 0 2 8 】

以上、本発明の具体例を詳細に説明したが、これらは例示にすぎず、特許請求の範囲を限定するものではない。特許請求の範囲に記載の技術には、以上に例示した具体例を様々に変形、変更したものが含まれる。

また、本明細書または図面に説明した技術要素は、単独であるいは各種の組み合わせによって技術的有用性を発揮するものであり、出願時請求項記載の組み合わせに限定されるものではない。また、本明細書または図面に例示した技術は複数目的を同時に達成するものであり、そのうちの一つの目的を達成すること自体で技術的有用性を持つものである。

## 【図面の簡単な説明】

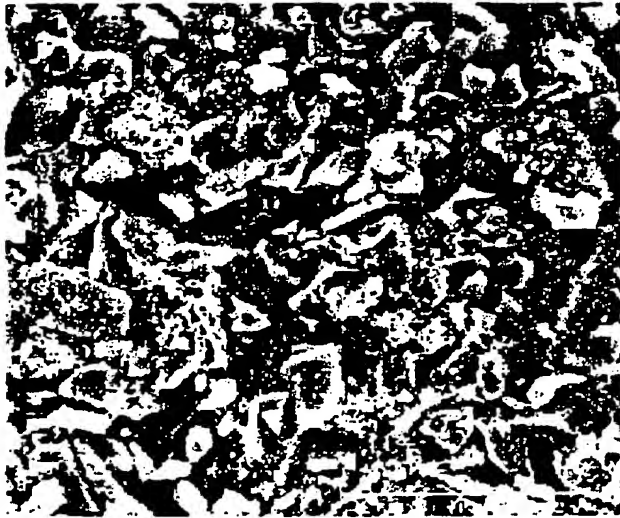
【図 1】 一実施例に係る多孔質セラミック材の表面構造を示す電子顕微鏡（SEM）写真である。

【図 2】 一比較例に係る多孔質セラミック材の表面構造を示す電子顕微鏡（SEM）写真である。



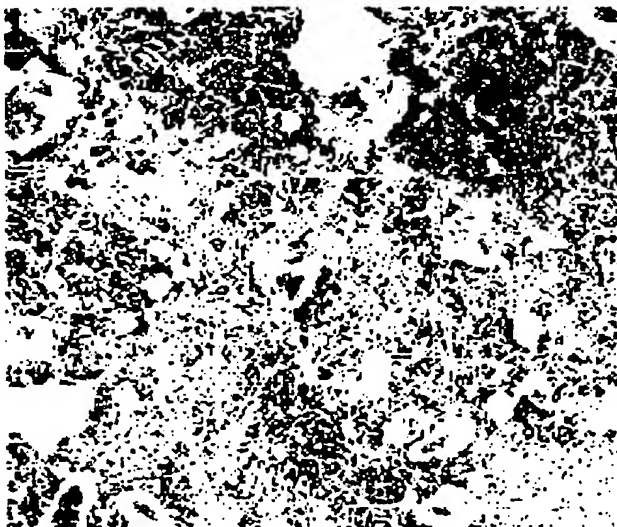
【書類名】 図面

【図 1】



50  $\mu$  m

【図 2】



50  $\mu$  m

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 セラミック分離膜の基材等として用いるのに好適な非酸化物系多孔質セラミック材を比較的低コストに製造し得る方法を提供すること。

【解決手段】 上記課題を解決する本発明の製造方法は、金属シリコン粉末と窒化ケイ素粉末及び／又は炭化ケイ素粉末とを含む成形用材料であって、窒化ケイ素粉末と炭化ケイ素粉末の合計 1 0 0 質量部に対して 5 ～ 6 0 質量部の金属シリコン粉末を含む成形用材料を用意する工程と、該成形用材料を所定の形状に成形する工程と、該成形用材料から成る成形体を窒化可能な雰囲気中で反応焼結させる工程とを包含する。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000004293]

1. 変更年月日 1990年 8月29日

[変更理由] 新規登録

住 所 愛知県名古屋市西区則武新町3丁目1番36号

氏 名 株式会社ノリタケカンパニーリミテド

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000213297]

1. 変更年月日	1990年 8月16日
[変更理由]	新規登録
住 所	愛知県名古屋市東区東新町1番地
氏 名	中部電力株式会社